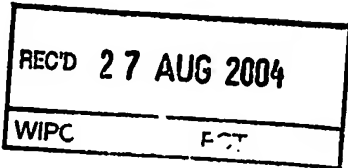


BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**PRIORITY
DOCUMENT**SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung****BEST AVAILABLE COPY****Aktenzeichen:**

103 32 776.2

Anmeldetag:

17. Juli 2003

Anmelder/Inhaber:

Sasol Germany GmbH, 20537 Hamburg/DE

Bezeichnung:Verfahren zur Herstellung von Aluminiumtrihydraten
mit hohem Porenvolumen, nach diesem Verfahren
hergestellte Aluminiumtrihydrate und deren Verwen-
dung**IPC:**

C 01 F 7/36

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.****München, den 10. August 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag****Wehner**



D-03005 DE

Verfahren zur Herstellung von Aluminiumtrihydraten mit hohem Porenvolumen, nach diesem Verfahren hergestellte Aluminiumtrihydrate und deren Verwendung

5 Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von Aluminiumtrihydraten $\text{Al}(\text{OH})_3$ durch Hydrolyse von Aluminiumalkoholaten in wässriger, alkalischer Lösung unter Zusatz organischer Verbindungen, die so hergestellten Aluminiumtrihydrate und deren Verwendung als Katalysatorträger.

10 Allgemein sind drei Aluminiumtrihydroxid-Modifikationen, im Folgenden „Aluminiumtrihydrat“ genannt, bekannt: $\alpha\text{-Al}(\text{OH})_3$, $\beta\text{-Al}(\text{OH})_3$ und $\gamma\text{-Al}(\text{OH})_3$.

15 $\alpha\text{-Al}(\text{OH})_3$ (Hydrargillit, Gibbsit) ist Bestandteil natürlich in großen Mengen vorkommender Bauxit-Vorkommen. Es findet industriell hauptsächlich Anwendung als Einsatzprodukt technischer Reinheit bei der Gewinnung von Aluminium (Bauxit-Aufschluss) und als preiswertes Ausgangsprodukt zur Herstellung von Natriumaluminat. Aufgrund der hohen Verunreinigungen ist natürlich vorkommendes Bauxit nicht als Katalysatorträger geeignet.

20 $\beta\text{-Al}(\text{OH})_3$, bekannter als Bayerit, kann durch Salzfällung aus Aluminium-Sulfat- und Natriumaluminatlösung oder durch Hydrolyse von Aluminiumalkoholat hergestellt werden. Die letztere Variante ist geeignet, hochreines Bayerit herzustellen, während aus der Salzfällung Natrium- und Sulfat-verunreinigte Produkte anfallen. Der hochreine Bayerit und seine durch Kalzinierung entstehenden Folgeprodukte finden industriell in der Katalysatorträgerherstellung Anwendung. Auf Grund des kristallinen Charakters (Kristallitgröße 30 bis 40 nm gemessen am 311-Reflex) ist dieses Material nicht dispergierbar und somit schwer zu pastösen Massen für die Extrudatherstellung, wie sie bei der Katalysatorträgerherstellung eingesetzt werden, verarbeitbar.

30 Die Herstellung von $\gamma\text{-Al}(\text{OH})_3$, auch Nordstrandit genannt, ist ebenfalls bekannt. Aufgrund nur geringer Unterschiede in den physikalischen Merkmalen zum Bayerit hat der Nordstrandit keine besondere technische Bedeutung. Hinzu kommt, dass die Synthese aufgrund hoher Waschwassermengen umwelttechnisch bedenklich und durch die Synthesedauer von mehr als 3 Tagen unwirtschaftlich ist.

35 Aluminiumhydroxide werden u.A. durch Fällung aus wässrigen Lösungen unter Einsatz eines Fällungshilfsmittels hergestellt. So beschreibt die US 5,928,127 die Fällung eines Aluminiumoxid-Sols aus einer wässrigen Lösung unter Zusatz von Sulfonsäuren.



Aus der DE 195 22 946 ist weiterhin ein Verfahren zur Herstellung eines feinteiligen Aluminiumhydroxids durch Umsetzung von Aluminiumalkoxiden mit weiteren Metallalkoxiden bei hohen Rührerscherraten bekannt.

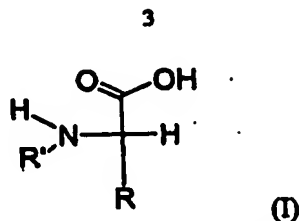
Die bisher bekannten Verfahren zur Herstellung von Aluminiumhydroxiden haben den Nachteil, dass die erhaltenen Aluminiumhydroxide keine ausreichende Reinheit zur Herstellung von Katalysatorträgern aufweisen oder nicht in einheitlicher Modifikation vorliegen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren zur Herstellung von Aluminiumtrihydroxiden (Aluminiumtrihydraten) $\text{Al}(\text{OH})_3$ bereitzustellen, die ein hohes Porenvolumen von größer 0,6 ml/g, bevorzugt größer 0,8 ml/g (bestimmt anhand der N_2 -Sorption), besonders bevorzugt von größer 1,0 ml/g, und niedrigere Kristallitgrößen bei hoher Reinheit, z.B. von kleiner 40 ppm Natrium und kleiner 50 ppm Sulfat, aufweisen, sowie Aluminiumtrihydroxide zur Verwendung als Katalysatorträger zur Verfügung zu stellen.

Diese Aufgabe wird durch ein Verfahren gemäß Anspruch 1 bzw. der weiteren unabhängigen Ansprüche gelöst, bevorzugte Ausführungsformen sind Gegenstand der Unteransprüche oder nachfolgend beschrieben.

Die beiden Parameter hohes Porenvolumen und niedrige Kristallitgröße sind bislang bei natürlich vorkommenden oder industriell hergestellten Aluminiumtrihydraten nicht beschrieben. Der Zugang zu diesen neuartigen Verbindungen ist von großer Bedeutung für die Weiterentwicklung von Katalysatorträgern.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von hochreinen Aluminiumtrihydraten $\text{Al}(\text{OH})_3$ durch Hydrolyse von Aluminiumalkoholaten, wobei die Alkoholatreste vorzugsweise 1 bis 24, besonders bevorzugt 4 bis 8, Kohlenstoffatome aufweisen, in wässriger, alkalischer Lösung unter Zusatz organischer Verbindungen, welche zumindest eine Carboxyl- und zumindest eine Amin-Gruppe und vorzugsweise zusätzlich zumindest eine Hydroxyl-Gruppe aufweisen. Vorzugsweise ist die organische Verbindung eine Aminosäure der allgemeinen Formel I bzw. dessen Salz:



mit R gleich H oder ein Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen und ggf. weiteren funktionellen Gruppen,
R' gleich H, oder
C1- bis C5-Alkyl, ggf. weitere funktionelle Gruppen tragend.

Vorzugsweise weist der Rest R der Aminosäure eine Hydroxylgruppe -OH auf. Besonders bevorzugt werden als Aminosäuren L-Serin, Asparginsäure, Glycin oder L-Leucin eingesetzt.

Soweit die erfindungsgemäß eingesetzten organischen Verbindungen als Salz vorliegen, sind die Ammoniumsalze, einschließlich z.B. der Alkanolammoniumsalze bevorzugt.

Erfindungsgemäß liegt die organische Verbindung in der Hydrolysevorlage bevorzugt in Mengen von 0,1 bis 1 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,2 bis 0,3 Gew.-% vor, berechnet als freie Säure und bezogen auf die Gesamtmasse der eingesetzten wässrigen Hydrolysevorlage.

Die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Aluminiumtrihydrate liegen vorzugsweise als α -Al(OH)₃ oder als γ -Al(OH)₃ vor, d.h. sie weisen bevorzugt eine Gibbsit- oder Nordstrandit- Struktur auf.

Die Hydrolyse wird erfindungsgemäß bei Temperaturen zwischen 0°C und 60°C, vorzugsweise zwischen 20°C und 60°C und besonders bevorzugt bei 30°C bis 40°C durchgeführt. Die wässrige, alkalische Lösung weist dabei vorzugsweise einen pH-Wert von 8 bis 13, insbesondere von 9 bis 12 auf.

Die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Aluminiumtrihydrate haben bevorzugt ein Porenvolumen von 0,6 bis 1,5 ml/g, vorzugsweise 0,8 bis 1,1 ml/g.

Weiterhin ist Gegenstand der Erfindung die Verwendung der nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Aluminiumtrihydrate als Katalysatorträger:

Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht die Synthese neuartiger, Nordstrandit- und Gibbsit-ähnlicher Trihydrate durch Hydrolyse von Aluminiumalkoholaten in wässriger, alkalischer Lösung unter Zusatz organischer Verbindungen, welche zumindest eine Carboxyl- und eine Amin-Gruppe aufweisen. Besonders geeignet sind Aminosäuren.

Beim Einsatz verschiedener Aminosäuren zeigen sich Zusammenhänge zwischen der Beschaffenheit der Seitengruppe der eingesetzten Aminosäure und dem erhaltenen Trihydrat. In vielen Synthesen wird ein Gemisch aus Bayerit, Gibbsit und Nordstrandit, erhalten, i.d.R. werden aber nach dem erfindungsgemäßen Verfahren Gibbsit und/oder Nordstrandit gebildet.

Die Anwesenheit von Aminosäure-Verbindungen führt zu Aluminiumtrihydraten mit erhöhtem Porenvolumen. Aminosäuren wie L-Leucin, Glycin, L-Serin, L-Threonin, L-Asparaginsäure, L-Glutaminsäure, L-Cystein sowie deren Dimer Cystin und Homocystein führen zur Bildung von Nordstrandit- und/oder Gibbsit-ähnlichen Materialien.

Bei der Verwendung von L-Leucin (Seitengruppe $-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$) in der Hydrolysevorlage wird ein Trihydrat mit Gibbsit-Struktur gefällt. Gleiches gilt für L-Cystein, dem Dimer des Cysteins und Homocystein in der Hydrolysevorlage.

Dagegen können Glycin oder Aminosäuren mit einer hydroxid-haltigen Seitengruppe (L-Serin: $\text{R} = -\text{CH}_2-\text{OH}$, Asparaginsäure: $\text{R} = -\text{CH}_2-\text{COOH}$) bevorzugt zur Fällung der Nordstrandit-Form eingesetzt werden. Glycin, L-Serin, Asparaginsäure und L-Threonin führen bevorzugt zur Fällung in der Nordstrandit-Form.

Eine Erhöhung der Aminosäuremenge in der Hydrolysevorlage kann die Trihydrat-Fällung bis zur völligen Unterdrückung zugunsten einer amorphen Böhmitbildung behindern. Eine weitere Verminderung der Aminosäuremenge begünstigt die Fällung von Bayerit. Bei der Verwendung von Glycin z.B. ist als optimale Menge 0,25 Gew.-% bis 0,3 Gew.-% in der Vorlage, bezogen auf die Hydrolysevorlage, anzusehen, um einen möglichst phasenreinen Nordstrandit zu erhalten.

Weiterhin ist Gegenstand der Erfindung, die Aluminiumtrihydrate ggf. in einem weiteren Schritt nach der Hydrolyse einem Alterungsprozess zu unterziehen. Die Alterung wird vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 30°C und 100 °C, insbesondere zwischen 40°C und 60°C durchgeführt, vorzugsweise für einen Zeitraum von mehr als 1 h vorzugsweise mehr als 2 h. Unabhängig hiervon beträgt die Feststoffkonzentration der zu

alternden Aufschlämmung (Slurry) bevorzugt 2 bis 17 Gew.-%, vorzugsweise 3 bis 5 Gew.-%, berechnet als Al_2O_3 und bezogen auf das Gesamtgewicht des Slurry.

Die in diesem Verfahren beschriebenen neuartigen Trihydrate zeichnen sich durch ein hohes Porenvolumen von größer 0,6, vorzugsweise größer 0,8 ml/g aus. Eine hohe Reinheit der Produkte ist durch die Herstellung, d.h. die Hydrolyse von gereinigtem Aluminiumalkoholat erreicht worden. Durch eine geringere Kristallitgröße als im herkömmlichen Bayerit sind die Trihydrate teildispersierbar und somit sehr gut zu pastösen Massen für die Extrudatherstellung verarbeitbar.

Alkalische Lösungen im Sinne der Erfindung sind wässrige Lösungen mit einem pH-Wert von größer 8, vorzugsweise 9 bis 12. Der alkalische pH-Wert der Hydrolysevorlage kann aber auch durch Zugabe geeigneter Substanzen, wie z.B. Ammoniak, Alkalilaugen oder pH-Stellmitteln erreicht werden.

Erfindungsgemäß werden zur Herstellung der Aluminiumtrihydrate Aluminiumalkoholate eingesetzt. Die Aluminiumalkoholate können z.B. nach dem Ziegler-Verfahren hergestellt sein, wobei vorzugsweise durch Filtration eine Aufreinigung stattfindet. Als Aluminiumalkoholate können beispielsweise eingesetzt werden C1-bis C24-Alkohole oder deren Gemische.

Beispiele:

Beispiel 1a (Vergleichsbeispiel)

457 g Wasser und 23 g 25%ige Ammoniaklösung wurden in einem 2 l-Dreihalskolben auf 30°C temperiert. In diese Vorlage wurden unter Rühren und Halten der Temperatur 400 g Aluminiumhexanolat tropfenweise innerhalb 1 Stunde hinzu gegeben. Es bildeten sich zwei nicht mischbare Phasen, eine obenstehende Alkoholphase und eine Tonerde/Wasser-Phase.

Nach Abdekantieren der Alkoholphase wurde die Tonerde/Wasser-Phase nach weiterer Zugabe von Wasser 5 h bei 30°C unter Rühren gealtert. Nach Entfernung des im Wasser gelösten Alkohols wurde ein pH-Wert zwischen 9,5 und 10,5 bestimmt und die Tonerdeaufschlämmung getrocknet.

Beispiel 1b (Vergleichsbeispiel)

Zur Herstellung von Bayerit aus einer Salzlösung wurden 100 g Natriumaluminatlösung und 200 g Wasser in einem 1-l-Dreihalskolben auf 30°C temperiert. In diese Vorlage wurde unter Rühren und Halten der Temperatur Aluminiumsulfatlösung gegeben, bis ein pH-Wert von 10 erreicht war. Diese Zugabe erfolgte innerhalb von 45 Minuten. Daraufhin wurde auf 70°C erwärmt und unter Rühren und Halten der Temperatur 30 Minuten gealtert. Der aus der Filtration des warmen Reaktionsgemisches resultierende Filterkuchen wurde mit 1,5 l Wasser gewaschen und getrocknet.

Beispiel 2

Folgende Substanzen wurden analog zu Beispiel 1a umgesetzt:

464 g	Wasser
22,2 g	Ammoniaklösung (25%ig)
1,4 g	Glycin in der Vorlage
400 g	Aluminiumhexanolat

Dabei wurden die zusätzliche Aminosäure bereits vor Reaktionsbeginn mit dem Wasser und der Ammoniaklösung im Dreihalskolben vorgelegt.

Beispiel 3

Die Versuchsdurchführung und die eingesetzten Stoffe und Mengen entsprechen Beispiel 2. In Abweichung wurde die Tonerdeaufschlammung vor der Trocknung 16 h bei 50°C unter Rühren einer weiteren Alterung unterzogen.

Beispiel 4 (Nordstrandit)

Die Versuchsdurchführung erfolgte analog zu Beispiel 1a mit folgenden Einsatzmengen:

232 g	Wasser
11,1 g	Ammoniaklösung (25%ig)
0,6 g	L-Asparaginsäure in der Vorlage
200 g	Aluminiumhexanolat

Beispiel 5 (Vergleichsbeispiel, nicht erfindungsgemäß)

Die Versuchsdurchführung erfolgte analog zu Beispiel 1a mit folgenden Einsatzmengen:

232 g	Wasser
11,1 g	Ammoniaklösung (25%ig)
1,2 g	L-Asparaginsäure in der Vorlage
200 g	Aluminiumhexanolat

Der Versuch 5 wurde mit einer hoher L-Asparaginsäuremenge durchgeführt. Das erhaltene Produkt wies dem Ergebnis der Röntgenstrukturanalyse zu Folge eine Böhmitstruktur auf.

Beispiel 6 (Nordstrandit)

Die Versuchsdurchführung erfolgte analog zu Beispiel 1a mit folgenden Einsatzmengen:

232 g	Wasser
11,1 g	Ammoniaklösung (25%ig)
0,6 g	L-Serin in der Vorlage
200 g	Aluminiumhexanolat

Beispiel 7 (Gibbsit/Bayerit)

Die Versuchsdurchführung erfolgte analog zu Beispiel 1a mit folgenden Einsatzmengen:

232 g	Wasser
11,1 g	Ammoniaklösung (25%ig)
1,2 g	L-Leucin in der Vorlage
200 g	Aluminiumhexanolat

Beispiel 8 (Gibbsit/Böhmit)

Die Versuchsdurchführung erfolgte analog zu Beispiel 1a mit folgenden Einsatzmengen:

232 g	Wasser
11,1 g	Ammoniaklösung (25%ig)
0,6 g	L-Cystein in der Vorlage
200 g	Aluminiumhexanolat

Beispiel 9 (Bayerit)

Die Versuchsdurchführung erfolgte analog zu Beispiel 1a mit folgenden Einsatzmengen:

232 g	Wasser
11,1 g	Ammoniaklösung (25%ig)
0,6 g	L-Tyrosin in der Vorlage
200 g	Aluminiumhexanolat

Beispiel 10 (Vergleichsbeispiel)

500 g 20%ige Ethylendiaminlösung wurden in einem 1 l-Dreihalskolben auf 30°C temperiert. In diese Vorlage wurden unter Rühren und Halten der Temperatur 12,5 g Aluminium in Pulverform portionsweise innerhalb einer halben Stunde zugegeben. Daraufhin

wurde auf 50°C erwärmt und unter Halten der Temperatur 3 Tage schwach gerührt. Nach Zugabe weiterer 50 g Ethylendiamin wurde weitere 4 Tage schwach gerührt. Das Reaktionsgemisch wurde nun filtriert und der resultierende Filterkuchen nach erfolgter Waschung mit Wasser und Ethanol getrocknet.

5

Das Phasenverhalten wurde mittels STA bestimmt. Die Simultane Thermische Analyse (STA) umfasst die differentielle Thermoanalyse und die Thermogravimetrie. Die Aufheizrate betrug 10 K/min unter Luftspülung. Die Oberfläche der Aluminiumoxide wurde mittels N₂-Sorptionsanalytik nach BET bestimmt (DIN 66131) bestimmt. Das Porenvolumen und der mittlere Porenradius wurden mittels N₂-Sorption nach BJH (DIN 66134) bestimmt.

10

15

In Fig. 1 ist das Röntgenübersichtsdiffraktogramm (Drucker AXS, D5000, mit Scintillationszähler und CuK_α Strahlung, 2θ = 6 bis 80°) und in Fig. 2 das DSC/TG von Beispiel 2 dargestellt.

20

25

30

35

Tabelle 1
Eigenschaften der Produkte
der Beispiele 1 bis 10:

#	Phase lt. XRD	Ober- fläche m ² /g	Poren- volumen* ml/g	Mittl. Porenradius* nm
1a	Bayerit	277	0,39	3
1b	Bayerit	311	0,37	3
2	Nordstrandit mit wenig Bayerit	272	0,89	6
3	Nordstrandit mit wenig Bayerit	286	1,04	7
4	Nordstrandit mit wenig Bayerit	266	0,81	6
5	Böhmit	293	0,51	3
6	Nordstrandit mit wenig Bayerit	267	0,76	6
7	Amorpher Gibbsit mit wenig Bayerit	269	0,70	5
8	Amorpher Gibbsit mit wenig Bayerit und Böhmit	303	0,63	4
9	Bayerit	264	0,71	2
10	Nordstrandit (Hauschild)	214	0,25	2

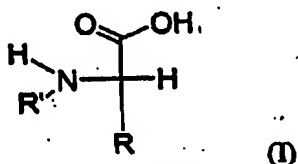
•Die Aktivierungstemperatur betrug 550°C für 3 Stunden.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Aluminiumtrihydraten durch Hydrolyse von Aluminiumalkoholaten bei 0°C bis 60°C in wässriger Lösung mit einem pH-Wert von größer 8 unter Zusatz organischer Verbindungen mit 2 bis 24 Kohlenstoffatomen bzw. deren Salzen, welche jede für sich genommen zumindest eine Aminogruppe und zumindest eine Carboxylgruppe aufweist.

2. Verfahren gemäß Anspruch 1 dadurch gekennzeichnet, dass die organische Verbindungen eine Aminogruppe in 2, 3 oder 4 Stellung, vorzugsweise in 2 Stellung, zur Carboxylgruppe aufweist.

3. Verfahren einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die organische Verbindung eine Aminosäure der allgemeinen Formel I ist



mit R gleich H oder ein Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen mit ggf. einer oder mehreren funktionelle Gruppen, und R' gleich H, oder C1- bis C5-Alkyl mit ggf. einer oder mehreren funktionelle Gruppen ist.

4. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die organische Verbindung weiterhin zumindest eine Hydroxylgruppe aufweist.

5. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die organische Verbindung L-Serin, Asparginsäure, Glycin und/oder L-Leucin ist.

6. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die organische Verbindung zu 0,01 bis 1 Gew.-%, vorzugsweise zu 0,2 bis 0,5 Gew.-%, bezogen auf die Hydrolysevorlage, vorliegt.

7. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die hergestellten Aluminiumtrihydrate eine Nordstrandit- oder Gibbsit-Struktur aufweisen.
- 5 8. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrolyse bei Temperaturen zwischen 20°C und 60°C, vorzugsweise zwischen 30°C und 40°C durchgeführt wird.
- 10 9. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass Aluminiumalkoholate zu Hydrolysevorlage in einem Gewichtsverhältnis von 1 zu größer 0,5, vorzugsweise 1 zu 0,7 bis 1 zu 3 eingesetzt werden.
- 15 10. Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass in einem weiteren Schritt nach der Hydrolyse die Aluminiumverbindung einer hydrothermalen Alterung, vorzugsweise über zumindest 1 h, unterzogen wird.
- 20 11. Verfahren gemäß Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass die hydrothermale Alterung bei Temperaturen zwischen 30°C und 100 °C, vorzugsweise zwischen 40°C und 60°C, durchgeführt wird.
- 25 12. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, dass die hydrothermalen Alterung in einer Feststoffaufschlämmung mit einer Feststoffkonzentration von 2 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 3 bis 5 Gew.-%, berechnet als Al_2O_3 und bezogen auf das Gesamtgewicht der Feststoffaufschlämmung, durchgeführt wird.
- 30 13. Aluminiumtrihydrate, herstellbar nach einem Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, die ein Porenvolumen von größer 0,6 ml/g, vorzugsweise 0,8 bis 1,5 ml/g, aufweisen.
14. Verwendung von Aluminiumtrihydraten gemäß Anspruch 13 als Katalysatorträger.

Zusammenfassung

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von Aluminiumtrihydraten durch Hydrolyse von Aluminiumalkoholaten in wässriger, alkalischer Lösung unter Zusatz organischer Verbindungen, die so hergestellten Aluminiumtrihydrate und deren Verwendung als Katalysatorträger

10

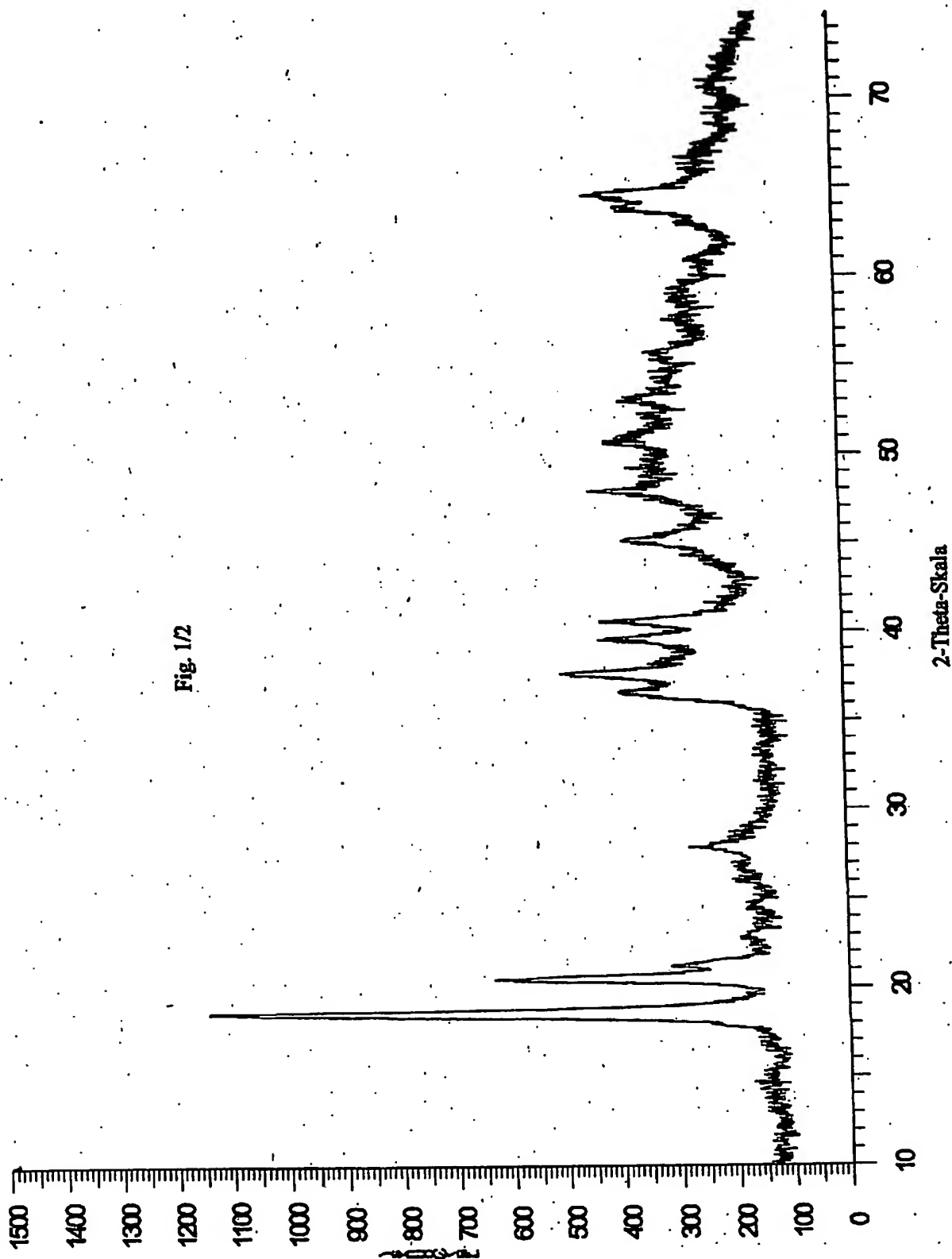
15

20

25

30

35



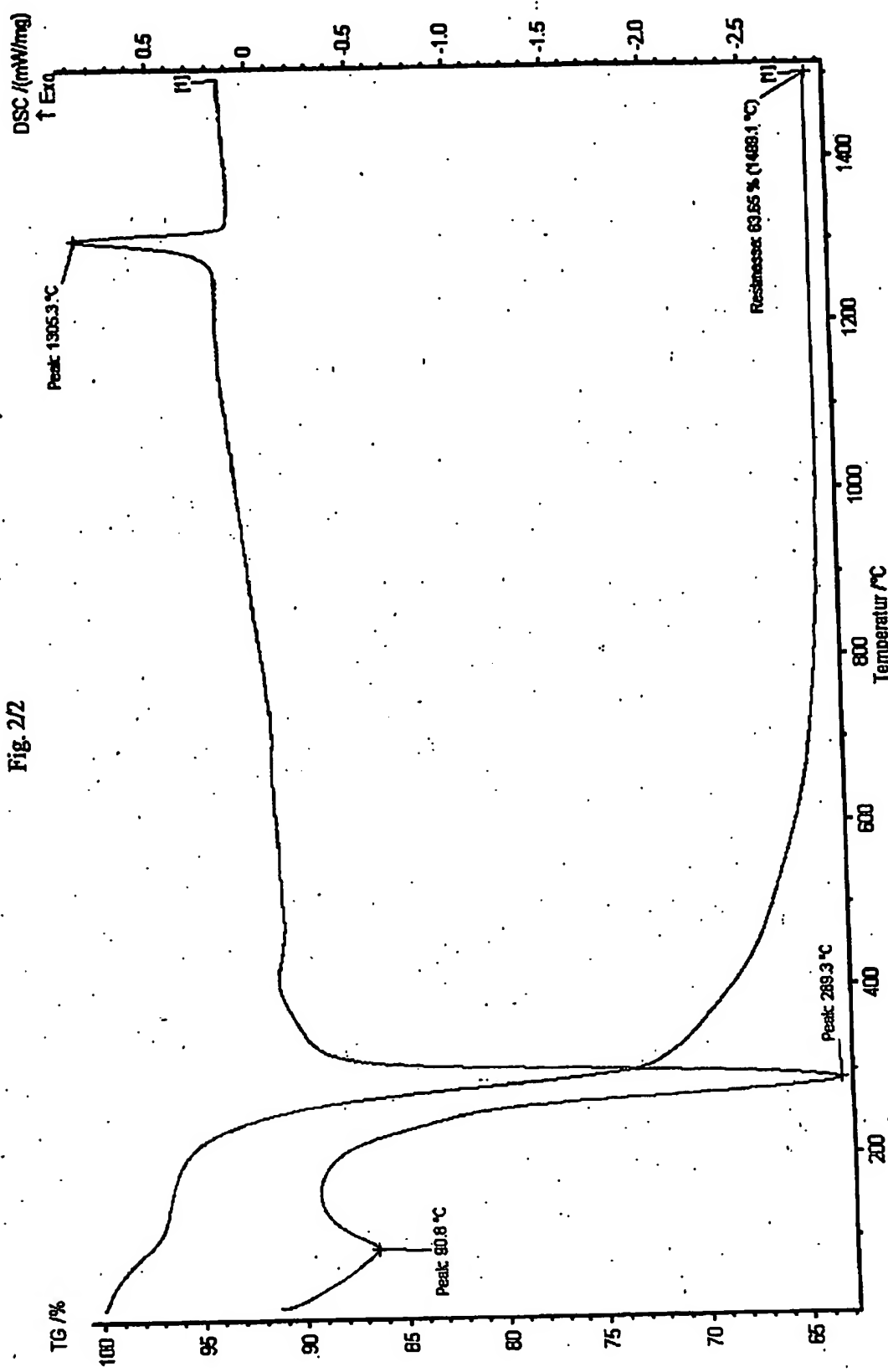


Fig. 2/2

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.